

# Document made available under the Patent Cooperation Treaty (PCT)

International application number: PCT/JP05/007368

International filing date: 12 April 2005 (12.04.2005)

Document type: Certified copy of priority document

Document details: Country/Office: JP  
Number: 2004-120860  
Filing date: 15 April 2004 (15.04.2004)

Date of receipt at the International Bureau: 20 May 2005 (20.05.2005)

Remark: Priority document submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b)



World Intellectual Property Organization (WIPO) - Geneva, Switzerland  
Organisation Mondiale de la Propriété Intellectuelle (OMPI) - Genève, Suisse

日 本 国 特 許 庁  
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日  
Date of Application: 2 0 0 4 年 4 月 1 5 日

出 願 番 号  
Application Number: 特 願 2 0 0 4 - 1 2 0 8 6 0

パリ条約による外国への出願  
に用いる優先権の主張の基礎  
となる出願の国コードと出願  
番号  
J P 2 0 0 4 - 1 2 0 8 6 0  
The country code and number  
of your priority application,  
to be used for filing abroad  
under the Paris Convention, is

出 願 人  
Applicant(s): ポリプラスチックス株式会社

2 0 0 5 年 4 月 2 7 日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

小 川



【書類名】	特許願
【整理番号】	042004
【提出日】	平成16年 4月15日
【あて先】	特許庁長官殿
【国際特許分類】	C08K 7/02 C08K 7/14
【発明者】	
【住所又は居所】	静岡県富士市宮島9 7 3 番地
【氏名】	ポリプラスチックス株式会社内 青木 啓
【発明者】	
【住所又は居所】	静岡県富士市宮島9 7 3 番地
【氏名】	ポリプラスチックス株式会社内 坂井 晶行
【発明者】	
【住所又は居所】	静岡県富士市宮島9 7 3 番地
【氏名】	ポリプラスチックス株式会社内 渡辺 一史
【特許出願人】	
【識別番号】	3900006323
【氏名又は名称】	ポリプラスチックス株式会社
【代理人】	
【識別番号】	100090491
【弁理士】	
【氏名又は名称】	三浦 良和
【手数料の表示】	
【予納台帳番号】	026033
【納付金額】	16,000円
【提出物件の目録】	
【物件名】	特許請求の範囲 1
【物件名】	明細書 1
【物件名】	図面 1
【物件名】	要約書 1
【包括委任状番号】	9406653

【書類名】 特許請求の範囲

【請求項 1】

樹脂（A）80～55重量％と、重量平均繊維長（L）1mm以上の繊維状充填剤（B）20～45重量％（ここで、樹脂（A）と繊維状充填剤（B）の合計は100重量％である。）を押出機に供給して、樹脂組成物ペレット中の繊維状充填剤（B）の重量平均繊維長（ $l$ ）が180～360 $\mu$ mである樹脂組成物ペレットを製造する際に、押出機のメインフィードロから樹脂（A）の一部の量（ $x$ ）を供給し、メインフィードロより押出方向後方に設けられたサイドフィードロから繊維状充填剤（B）および樹脂（A）の残りの量（ $1-x$ ）を $x/(1-x)$ が50/50～10/90重量％比となるように供給する樹脂組成物ペレットの製造方法。

【請求項 2】

樹脂組成物ペレット中の繊維状充填剤（B）が、繊維長300 $\mu$ m超のものの割合が5～40重量％である請求項1に記載の樹脂組成物ペレットの製造方法。

【請求項 3】

樹脂組成物ペレットが、押出機により単通処理されて得られたものである請求項1又は2に記載の樹脂組成物ペレットの製造方法。

【請求項 4】

樹脂（A）が液晶性ポリマーである請求項1～3のいずれか1項に記載の樹脂組成物ペレットの製造方法。

【請求項 5】

繊維状充填剤（B）が、ガラス繊維及び／又はカーボン繊維である請求項1～4のいずれか1項に記載の樹脂組成物ペレットの製造方法。

【請求項 6】

樹脂組成物ペレット毎の繊維状充填剤（B）の含有率のバラツキが3重量％以下である請求項1～5のいずれか1項に記載の樹脂組成物ペレットの製造方法。

【請求項 7】

樹脂組成物ペレット毎の繊維状充填剤（B）の重量平均長さのバラツキが30％以下である請求項1～6のいずれか1項に記載の樹脂組成物ペレットの製造方法。

【請求項 8】

半導体装置用の多数のピン孔が設けられた格子部のピッチ間隔が2.0mm以下、格子部の肉厚が0.5mm以下、ソケットの高さが5.0mm以下の平面状ソケットに用いられる請求項1～7のいずれか1項に記載の樹脂組成物ペレットの製造方法。

【請求項 9】

押出機が2軸押出機であり、スクリュー長さ／スクリュー径（ $L/D$ ）の比が20以上であり、スクリューが可塑化部と混練部を有し、サイドフィードロが可塑化部の下流に位置する請求項1～8のいずれか1項に記載の樹脂組成物ペレットの製造方法。

【請求項 10】

樹脂組成物ペレットの熔融粘度が10～55Pa $\cdot$ sである請求項1～9のいずれか1項に記載の樹脂組成物ペレットの製造方法。

【請求項 11】

樹脂組成物ペレットを射出成形して得られた成形品が、曲げ弾性率15000MPa以上、及びハンダリフロー処理前の平面度が0.09mm以下、及びピーク温度230～280℃でのハンダリフロー処理相当加熱前後の平面度の差が0.02mm以下である請求項1～10のいずれか1項に記載の樹脂組成物ペレットの製造方法。

【書類名】 明細書

【発明の名称】 繊維状充填剤の長さが制御された樹脂組成物ペレットの製造方法

【技術分野】

【0001】

本発明は、押出機を使用して、樹脂に繊維状充填剤を添加して、特定の微細な重量平均繊維長、さらには特定の繊維長分布を有する樹脂組成物ペレットを、経済的に製造する方法に関する。該ペレットは、半導体装置のピンのソケット、特に、多数のピン孔が設けられた格子部のピッチ間隔が2 mm以下のソケットの成形に用いられる樹脂組成物ペレットの製造に適する。

【背景技術】

【0002】

従来、押出機を用いて樹脂にガラス繊維などを混練する場合に、樹脂の溶融粘度が非常に低い場合には、樹脂をメインフィードロから投入し、繊維をサイドフィードして得られたペレットを用いて射出成形すると、ピッチ間隔の狭い半導体装置のソケットなどを成形した場合に、十分な流動性が得られないために完全に充填した成形品が得られないか、又は無理に充填させると充填圧が高いために得られるソケットの反り変形量が大きくなると言う問題があった。

【0003】

特開平6-240114号公報には、(A)異方性溶融相を形成する液晶ポリエステル樹脂および／または液晶ポリエステルアミド樹脂から選ばれた少なくとも1種以上の液晶性樹脂100重量部に対して、(B)平均繊維径が3～15  $\mu$ mのガラス繊維5～300重量部を充填してなり、該組成物中の重量平均繊維長が0.02～0.55 mmの範囲にあって、かつ、繊維長が1 mmを越えるガラス繊維の比率が該ガラス繊維の0～15重量%、かつ、繊維長が0.1 mm以下のガラス繊維の比率が該ガラス繊維の0～50重量%であるガラス繊維強化液晶性樹脂組成物から得られたペレットを射出成形して、射出成形時の流動長さ、及び成形品の収縮率、面衝撃強度等を求めている(特許文献1参照)。

しかし、この技術は、所望のガラス繊維充填において、ガラス繊維の重量比や平均繊維径を自由に制御する技術ではない。

【0004】

【特許文献1】 特開平6-240114号公報(請求項1、実施例の表1)

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0005】

本発明の目的は、所望の充填量の繊維状充填剤の樹脂組成物ペレットにおいて、繊維状充填剤が、均一に配合され、求める重量平均繊維長(1)を有し、射出成形品にした場合に特定の性能を有する樹脂組成物ペレットを、通常押出機により簡便な方法で、樹脂の劣化を抑え、経済的に、樹脂組成物ペレットを製造する方法を提供することである。

特に、半導体装置の格子部のピッチ間隔が2.0 mm以下、格子部の肉厚が0.5 mm以下、ソケットの高さが5.0 mm以下の平面状ソケットピンのソケットに用いられる樹脂組成物ペレットを製造する方法を提供することである。

【課題を解決するための手段】

【0006】

本発明者らは、メインフィードロから少量の樹脂を供給し、繊維状充填剤を残りの多量の樹脂と共にサイドフィードすることにより、上記課題が解決できることを見出し、本発明を完成するに至った。

【0007】

すなわち本発明の第1は、樹脂(A)80～55重量%と、重量平均繊維長(L)1 mm以上の繊維状充填剤(B)20～45重量%(ここで、樹脂(A)と繊維状充填剤(B)の合計は100重量%である。)を押出機に供給して、樹脂組成物ペレット中の繊維状充填剤(B)の重量平均繊維長(1)が180～360  $\mu$ mである樹脂組成物ペレットを

製造する際に、

押出機のメインフィードロから樹脂（A）の一部の量（x）を供給し、

メインフィードロより押出方向後方に設けられたサイドフィードロから繊維状充填剤（B）および樹脂（A）の残りの量（1-x）を $x/(1-x)$ が $50/50 \sim 10/90$ 重量%比となるように供給する樹脂組成物ペレットの製造方法を提供する。

本発明の第2は、樹脂組成物ペレット中の繊維状充填剤（B）が、繊維長 $300\mu\text{m}$ 超のものの割合が $5 \sim 40$ 重量%である本発明の第1に記載の樹脂組成物ペレットの製造方法を提供する。

本発明の第3は、樹脂組成物ペレットが、押出機により単通処理されて得られたものである本発明の第1又は2に記載の樹脂組成物ペレットの製造方法を提供する。

本発明の第4は、樹脂（A）が液晶性ポリマーである本発明の第1～3のいずれか1項に記載の樹脂組成物ペレットの製造方法を提供する。

本発明の第5は、繊維状充填剤（B）が、ガラス繊維及び／又はカーボン繊維である本発明の第1～4のいずれか1項に記載の樹脂組成物ペレットの製造方法を提供する。

本発明の第6は、樹脂組成物ペレット毎の繊維状充填剤（B）の含有率のバラツキが $3$ 重量%以下である本発明の第1～5のいずれか1項に記載の樹脂組成物ペレットの製造方法を提供する。

本発明の第7は、樹脂組成物ペレット毎の繊維状充填剤（B）の重量平均長さのバラツキが $30\%$ 以下である本発明の第1～6のいずれか1項に記載の樹脂組成物ペレットの製造方法を提供する。

本発明の第8は、半導体装置用の多数のピン孔が設けられた格子部のピッチ間隔が $2.0\text{mm}$ 以下、格子部の肉厚が $0.5\text{mm}$ 以下、ソケットの高さが $5.0\text{mm}$ 以下の平面状ソケットに用いられる本発明の第1～7のいずれか1項に記載の樹脂組成物ペレットの製造方法を提供する。

本発明の第9は、押出機が2軸押出機であり、スクリュー長さ／スクリュー径（L／D）の比が $20$ 以上であり、スクリューが可塑化部と混練部を有し、サイドフィードロが可塑化部の下流に位置する本発明の第1～8のいずれか1項に記載の樹脂組成物ペレットの製造方法を提供する。

本発明の第10は、樹脂組成物ペレットの熔融粘度が $10 \sim 55\text{Pa}\cdot\text{s}$ である本発明の第1～9のいずれか1項に記載の樹脂組成物ペレットの製造方法を提供する。

本発明の第11は、樹脂組成物ペレットを射出成形して得られた成形品が、曲げ弾性率 $15000\text{MPa}$ 以上、及びハンダリフロー処理前の平面度が $0.09\text{mm}$ 以下、及びピーク温度 $230 \sim 280^\circ\text{C}$ でのハンダリフロー処理相当加熱前後の平面度の差が $0.02\text{mm}$ 以下である本発明の第1～10のいずれか1項に記載の樹脂組成物ペレットの製造方法を提供する。

【発明の効果】

【0008】

本発明によれば、所望の充填量の繊維状充填剤の樹脂組成物ペレットにおいて、繊維状充填剤が、均一に配合され、求める重量平均繊維長（1）を有し、射出成形品にした場合に特定の性能を有する樹脂組成物ペレットを、通常押出機により簡便な方法で、樹脂の劣化を抑え、経済的に、樹脂組成物ペレットを製造することができる。

特に、半導体装置の格子部のピッチ間隔が $2.0\text{mm}$ 以下、格子部の肉厚が $0.5\text{mm}$ 以下、製品全体の高さが $5.0\text{mm}$ 以下の平面状ソケットピンのソケットに用いられる樹脂組成物ペレットを製造することができる。

【発明を実施するための最良の形態】

【0009】

押出機

本発明に係る押出機は、メインフィードロ1、可塑化部2、サイドフィードロ3、混練部4、得られた樹脂組成物の押出しダイ5、スクリュー6、シリンダー7、及び必要に応じて設けられるベントロ8および減圧装置9を有する。

サイドフィード口3は1個所であっても複数個所であってもよい。

#### 【0010】

押出機としては、特別な構造のものを用いる必要はなく、例えば、従来使用されているものがそのまま使用できる。具体的には、単軸型、二軸型の何れでもよく、二軸型では、同方向回転の1条ネジのものから3条ネジのものまで使用可能であり、異方向回転の平行軸もしくは斜軸、不完全噛み合い型でもよい。

押出機のスクリュー径、スクリュー長さ／スクリュー径比（ $L/D$ ）、スクリューデザイン、スクリュー回転数、同駆動力、加熱冷却能力には特に制限はなく、本発明が実施できるものを選択すればよい。

#### 【0011】

通常、スクリューデザインを決定するスクリューエレメントとしては、順フライトからなる搬送用エレメントと、可塑化部用エレメントおよび混練部用エレメントからなるが、本発明において、押出機における可塑化部および混練部のスクリューデザインは、樹脂の性質や充填剤の種類に応じて適宜、設計されるべきものである。

#### 【0012】

しかし、当初重量平均繊維長（ $L$ ）の繊維状充填剤（ $B$ ）を所定の重量平均繊維長（ $l$ ）及び繊維長分布に制御するには、後述するように、押出機に関してはスクリュー長さ、可塑化部長さ、混練部長さに加え、スクリューデザインも影響する。

2軸押出機の場合、可塑化部や混練部には逆フライト、シールリング、順ニーディングディスク、逆ニーディングディスク等のスクリューエレメントが組み合わされて構成されることが一般的である。

液晶性ポリマーのような熔融粘度が比較的低い樹脂（ $A$ ）に、ガラス繊維のような繊維状充填剤（ $B$ ）を全体中に20～45重量%配合してストランド状に押出するためには、混練部を可塑化部より長く設けることが好ましい。

#### 【0013】

また、ペントロを設けて減圧排気を行うには、熔融された樹脂組成物が押出機内で完全に充填されるシール部を設けることが好ましい。シール部を構成するスクリュー形状は、2軸押出機の場合、逆フライトのほか、シールリング、逆ニーディング等、幾何学的にスクリュー回転に対して昇圧能力を有するものが好適に用いられる。また、必要に応じてニーディングディスク等のエレメントが組み合わされて構成されても構わない。

通常は混練部下流で減圧排気し、混練部がシール部を兼ねている。メインフィード口より供給され可塑化された樹脂を繊維状充填剤投入前に減圧排気する場合には、ペントロとサイドフィード口の間にシール部を設けることが好ましい。

#### 【0014】

押出機の $L/D$ （スクリュー長さ／スクリュー径）は20以上、好ましくは20～80、さらに好ましくは25～60である。

可塑化部の $L/D$ は、スクリューのデザインや運転条件にもよるが、好ましくは2～15、さらに好ましくは3～10である。可塑化部の長さがあまりに短すぎると、樹脂の可塑化が不十分になり、サイドフィードされた繊維状充填剤が折損しすぎて好ましくなく、可塑化部の長さがあまりに長すぎると、樹脂が分解して物性低下やガス発生などの不具合が生じる。

混練部の $L/D$ は、スクリューのデザインや運転条件にもよるが、好ましくは2～25、さらに好ましくは5～15である。混練部の長さがあまりに短すぎると、繊維状充填剤の折れが不十分になり流動性が低下して好ましくなく、あまりに長すぎると発熱が大きくなり樹脂の分解や炭化、ガス発生などの不具合が生じる。

#### 【0015】

メインフィード口1への樹脂の供給およびサイドフィード口3への充填剤および樹脂の供給は、別々にまたは混合して、定質量または定容量供給装置を介して行われる。定量供給装置としては、ベルト式、スクリュー式、振動式などのいずれでもよい。

上記装置を用いて、サイドフィード口3における充填剤と樹脂との供給は、好ましくは

別々の定量供給装置を使用して行われる。具体的には、押出機のシリンダーバレルの側面からスクリューフイーダーにより供給する側面フィード法、シリンダー上部より縦型スクリューフイーダーで押出機に供給する方法、フィードロに副原料を直接落下させる方法等が用いられる。サイドフィードロ3は、好ましくは上部に設けられる。

サイドフィードロ3には、特に限定はないが、必要に応じて水冷ジャケットを備えて樹脂や充填剤の変化を抑えるようにしてもよい。

#### 【0016】

##### 樹脂

本発明において使用される樹脂(A)は、特に制限はないが、好ましくは熔融粘度が、融点より15℃高い温度で、ずり速度100/sに換算して1000Pa・s以下、さらに好ましくは50~500Pa・s、特に好ましくは10~100Pa・sの樹脂(A)である。

樹脂(A)としては、液晶性ポリマー、直鎖PPS、ナイロン6、ナイロン66、ナイロン610などが挙げられ、好ましくは液晶性ポリマーである。

液晶性ポリマーとしては、液晶ポリエステルや液晶ポリアミドが挙げられ、具体的には、パラヒドロキシ安息香酸残基/2,6-ヒドロキシナフタレンカルボン酸残基の組み合わせ、パラヒドロキシ安息香酸残基/ビフェノールやヒドロキノンのような芳香族二価ヒドロキシ化合物残基/テレフタル酸、イソフタル酸、ナフタレンジカルボン酸のような芳香族ジカルボン酸残基の組み合わせ、パラヒドロキシ安息香酸残基/脂肪族ジオール残基/芳香族ジカルボン酸残基の組み合わせ、さらにはこれらにp-アミノフェノール残基などが加えられた組み合わせ、あるいは一部脂肪族基を有するポリエチレンテレフタレートとp-ヒドロキシ安息香酸を共重合したものなどが挙げられる。

#### 【0017】

少なくともサイドフィードロ3から供給される樹脂(A)は、粒径50μm以上の粉末、好ましくは500μm以上の粉末、さらに好ましくは最小辺の長さ又は直径が1mm以上のペレットである。粒径等が上記範囲より小さすぎると、サイドフィード時に直ぐに熔融して、重量平均繊維長(L)の繊維状充填剤をフィードして、均一に混練し、重量平均繊維長(1)とすることが困難であり、さらには所定の繊維長分布とすることが困難になる。

#### 【0018】

なお、樹脂(A)が二種以上の混合物である場合には、メインフィードロ1から供給される樹脂とサイドフィードロ3から供給される樹脂の種類は同じであっても、異なってもよい。例えば、樹脂(A)が液晶性ポリマー1と液晶性ポリマー2の混合物である場合、液晶性ポリマー1をメインフィードロ1から供給し、液晶性ポリマー2と繊維状充填剤をサイドフィードロ3から供給するなどしてもよい。

#### 【0019】

##### 繊維状充填剤

繊維状充填剤(B)の種類としては、ガラス繊維、カーボン繊維、ポリエチレン繊維、ポリプロピレン繊維、ポリエステル繊維、ポリアミド繊維、フッ素繊維等が挙げられ、好ましくはガラス繊維、カーボン繊維である。これらは二種以上の混合物であってもよい。

これらの繊維状充填剤(B)は予めシラン系やチタン系などの各種のカップリング剤などで前処理されたものであってもよい。

ガラス繊維としては、エポキシ系、ウレタン系、アクリル系などの被覆あるいは集束剤で処理されているものでもよい。

#### 【0020】

繊維状充填剤(B)のサイドフィード前の重量平均繊維長(L)は1mm以上、好ましくは1~10mm、さらに好ましくは2~10mmである。

繊維の直径は通常のものが使用され、例えば3~15μmである。繊維の平均径が3μmより小さすぎると、補強材としての効果が小さくまた液晶性ポリマーの異方性緩和効果が少ない。一方、15μmより大きすぎると成形性が低下し、表面外観も悪化する。

#### 【0021】



また、サイドフィード前の繊維状充填剤（Ｂ）の長さに分布が無く、一定に揃っているチョップドストランドが好ましい。

#### 【００２２】

##### 樹脂組成物

得られる樹脂組成物ペレット中の樹脂（Ａ）と繊維状充填剤（Ｂ）の質量比率は、樹脂（Ａ）５５～８０重量％と、繊維状充填剤（Ｂ）４５～２０重量％、好ましくは（Ａ）６０～７０重量％と、（Ｂ）４０～３０重量％（ここで、樹脂（Ａ）と繊維状充填剤（Ｂ）の合計は１００重量％である。）である。

繊維状充填剤（Ｂ）の比率が多すぎると、得られる成形品の剛性が大きくなる反面、樹脂組成物の流動性が悪化して成形が困難になり、少なすぎると成形品の剛性等の物性が低下し、反り変形も悪くなる。

#### 【００２３】

本発明では、押出機のメインフィードロから樹脂（Ａ）の一部（ $x$ ）を供給し、メインフィードロより押出方向後方に設けられたサイドフィードロから繊維状充填剤（Ｂ）と樹脂（Ａ）の残り（ $1-x$ ）とを重量比  $x/(1-x)$  が、 $50/50 \sim 10/90$ 、好ましくは  $40/60 \sim 15/85$  となるように供給する。

サイドフィードロから供給される樹脂（Ａ）の量が上記範囲より多すぎても少なすぎても、折れすぎたり、折れ方が不足したりして、繊維状充填剤（Ｂ）を所定の重量平均繊維長（１）に、更には所定の繊維長分布に折ることが困難になる。

#### 【００２４】

繊維状充填剤（Ｂ）をサイドフィードロから供給するには、樹脂と同時にまたは樹脂よりも前の位置でフィードすることにより、折れ方が適切となる。

サイドフィードロは１個所であっても２個所であってもよく、２個所にする場合、上流側サイドフィードロより繊維状充填剤を供給し、下流側サイドフィードロより樹脂を供給することが好ましい。２個所のサイドフィードロ間に位置するスクリュウはフルフライトによる搬送ゾーンとすることが好ましく、混練部は下流のサイドフィードロよりさらに下流に位置することが好ましい。また、樹脂（Ａ）の各フィードロの供給割合を多少変化させて重量平均繊維長（１）、更には繊維長分布を微調整して目標性状範囲内にすることが可能である。

#### 【００２５】

得られたペレット中の繊維状充填剤（Ｂ）の重量平均繊維長（１）は  $180 \sim 360 \mu\text{m}$ 、好ましくは  $200 \sim 300 \mu\text{m}$ 、さらに好ましくは  $200 \sim 270 \mu\text{m}$  である。

ペレット中の重量平均繊維長（１）が上記範囲より短すぎると十分な高温剛性が得られなくなり、上記範囲より長すぎると、成形品を細い流路で成形する場合に流動不足となる。

繊維長分布も考慮することが重要であり、樹脂組成物ペレット中の繊維状充填剤（Ｂ）は、繊維長  $300 \mu\text{m}$  超のものの割合が  $5 \sim 40$  重量％、好ましくは  $10 \sim 30$  重量％である。

繊維長  $300 \mu\text{m}$  超のものの割合が上記範囲より多すぎると、成形品を細い流路で成形する場合に流動不足となり、上記範囲より少なすぎると、射出成形品の剛性や平面度等の物性が低下する。

なお、重量平均繊維長（１）およびその分布は樹脂を燃焼あるいは溶解した後、質量測定による方法あるいは顕微鏡観察した画像の計算機処理などによって得られる。

#### 【００２６】

樹脂組成物ペレット中の繊維状充填剤（Ｂ）の重量平均繊維長（１）及び分布が前記範囲内に保たれる範囲内において、サイドフィードされる樹脂（Ａ）の残り（ $1-x$ ）の一部として、押出機ダイ５から得られたストランド又はそれから得られたペレットの一部を、循環させることもできるが、好ましくは押出機により単通処理されて得られたものである。単通処理されて得られたものでは、樹脂の物性が低下しにくい。得られたペレットを循環させる比率が多すぎたり、循環回数が多すぎると樹脂が劣化して分子量が低下したり

ガス発生が生じたり、繊維状充填剤（Ｂ）が折れすぎて、重量平均繊維長（１）及び分布が前記範囲内に保たれなくなる。

#### 【００２７】

押出機の運転条件としては、シリンダー温度については、例えば、ベースとなる樹脂（Ａ）の融点ピーク温度（ＤＳＣ測定におけるピーク温度を意味する）～融点温度＋５０℃の範囲であり、スクリュウ回転数は例えば、１５０～５００ｒｐｍである。

#### 【００２８】

上記樹脂には副原料として、樹脂添加剤等が配合されていてもよい。樹脂添加剤としては、後述する低嵩密度粉体以外のものであって、可塑剤、熱安定剤、滑剤、ブロッキング防止剤、結晶化核剤、酸化防止剤、紫外線安定剤、帯電防止剤、難燃剤、流滴剤、耐水化剤、抗菌剤、防臭剤、脱臭剤、他の充填材（無機添加剤又は有機添加剤）、増量剤、着色剤等又はこれらの混合物が挙げられる。これらの副原料は、必要に応じてメインフィードロ１及び／又はサイドフィードロ３から供給される。

これらの添加剤が添加されたものも本発明に係る樹脂組成物の範囲に含まれる。

#### 【００２９】

樹脂組成物ペレットの成形

上記で得られた樹脂組成物ペレットは、特に成形方法には限定はないが、好ましくは射出成形等を使用される。

樹脂組成物ペレットの溶融粘度（融点より１５℃高い温度、ずり速度１０００／ｓ）は、実施例の項で述べる方法で測定して、５５Pa・s以下である。該溶融粘度が高すぎると、充填圧が高くなりすぎて射出成形が困難になり、無理に充填させると成形品の反り変形量が大きくなる。

#### 【００３０】

樹脂組成物ペレットを射出成形して得られた成形品は、曲げ弾性率１５０００MPa以上であり、ハンダリフロー処理前の平面度が０．０９mm以下、及びピーク温度２３０～２８０℃でのハンダリフロー処理相当加熱前後の平面度の差が０．０２mm以下である。

ここで、ピーク温度とはハンダリフロー処理における最高到達温度のことである。

ハンダリフロー処理は、例えば赤外線（ＩＲ）加熱によるものが好ましく使用できる。

ハンダリフロー処理相当加熱とは、ハンダを付けず、またハンダ付けする部品を搭載せずにリフローに必要な時間、上記温度で加熱することである。必要な加熱時間は、通常通り実際にハンダ付けする場合を想定して、成形品の大きさ、形状、印刷されるハンダの種類や印刷量、搭載部品の形状、大きさ、耐熱性、生産性等を考慮の上、適宜決めればよい。

#### 【００３１】

半導体装置のソケットの成形

上記の優れた平面度を有する成形品、特に半導体装置のソケットを得る方法としては、特に制限はないが、経済的な射出成形方法が好ましく用いられる。射出成形で優れた平面度を有するソケットを得るためには、前記の樹脂組成物を用いることが重要であるが、残留内部応力を生じない成形条件を選ぶことが好ましい。充填圧を低くし、得られるソケットの残留内部応力を低下させるために、成形機のシリンダー温度は、樹脂（Ａ）の融点Ｔ℃以上の温度が好ましく、またシリンダー温度が高すぎると樹脂の分解等に伴うシリンダーノズルからののはなタレ（洩垂れ）等の問題が発生するため、シリンダー温度は、Ｔ℃～（Ｔ＋３０）℃、好ましくはＴ℃～（Ｔ＋１５）℃である。また、金型温度は７０～１００℃が好ましい。金型温度が低いと充填する樹脂組成物が流動不良を起こし好ましくなく、金型温度が高すぎるとバリ発生等の問題が生じ好ましくない。射出速度は１５０mm／s以上が好ましい。射出速度が低いと未充填成形品しか得られないか、無理に完全に充填させると充填圧が高いために得られる成形品の残留内部応力が大きくなり、平面度の悪いソケットとなる場合がある。

#### 【００３２】

本発明によれば、通常のサイドフィードロを有する押出機で、市販のガラスファイバー

を一種類使用して、繊維状充填剤のフィードを良好に行うことが可能であり、押出機で単通（ワンパス）処理して得られるので樹脂の劣化が抑えられ、上記用途に適した樹脂組成物ペレットを、極めて容易に、安定的に、且つ経済的に製造することができる。

【 0 0 3 3 】

#### 〔実施例〕

以下、実施例により本発明を具体的に説明するが、本発明はこれらに限定されるものではない。

（実施例 1 ～ 4 および比較例 1 ～ 4 ）

（ 1 ）使用原料

樹脂（ A ）

液晶性ポリマーペレット：ポリプラスチック（株）製、ベクトラ E 9 5 0 i （融点 3 3 5 ℃、熔融粘度 3 0 P a ・ s （ 3 5 0 ℃、ずり速度 1 0 0 / s ）、ペレット寸法：約 5 ～ 3 m m × 約 3 ～ 2 m m × 約 3 ～ 1 m m ）

繊維状充填剤（ B ）

ガラス繊維（ G F と略す）：旭ファイバーグラス社製、C S 0 3 J A 4 1 9 （繊維径 1 0 μ m 、繊維長 3 m m のチョップドストランド）

樹脂添加剤

滑剤：日本油脂（株）製、ユニスター H - 4 7 6

（ 2 ）押出機

三菱重工業（株）製、2 軸スクリュウ押出機 P T E 6 5 （スクリュウ径 6 5 m m 、 L / D 3 6 . 8 ）

押出機のスクリュウの概略を図 1 に示す。

メインフィード口 1 ： C 1

可塑化部 2 ： C 4 ～ C 5 （構成：上流側より順ニーディング、逆ニーディング、長さ 3 0 0 m m ）

サイドフィード口 3 ： C 7

混練部 4 ： C 8 ～ C 1 1 （構成：上流側より順ニーディング、逆ニーディング、順ニーディング、逆ニーディング、逆フライト、順ニーディング、逆ニーディング、逆フライト、長さ 5 2 0 m m ）

メインフィード口へのフィーダー：クボタ社製スクリュウ式ロスインウェイト式フィーダー

サイドフィード口へのフィーダー

ペレット樹脂用：クボタ社製 2 軸スクリュウサイドフィーダー

ガラス繊維用：鎌長製衡社製ベルト式ロスインウェイト式フィーダー

（ 3 ）押出条件

シリンダー温度：メインフィード口 1 が設けられたシリンダー C 1 のみが 2 0 0 ℃であり、他のシリンダー温度は全て 3 5 0 ℃である。

ダイ温度： 3 5 0 ℃

（ 4 ）樹脂組成物の混練及び押出方法

上記 2 軸スクリュウ押出機を用い、液晶性ポリマーのペレットをメインフィード口 1 及びサイドフィード口 3 から供給し、滑剤をメインフィード口 1 から、ガラス繊維をサイドフィード口 3 から供給した。副原料フィード口には、2 軸サイドフィーダーを用いて供給し、液晶性ポリマーペレット、滑剤、ガラス繊維の供給量は、表 1 の割合になるように、重量フィーダーを用いて制御した。

スクリュウ回転数及び押出量は、表 1 のように設定し、ダイ 5 よりストランド状に吐出させた熔融樹脂組成物を、タナカ製作所製メッシュベルトコンベアで搬送しつつ、スプレー噴霧水により冷却した後、カッティングされ、ペレットとして得た。

（樹脂組成物の熔融粘度）

L = 2 0 m m 、 d = 1 m m のキャピラリー式レオメータ（（株）東洋精機製キャピログラフ 1 B 型）を使用し、温度 3 5 0 ℃、せん断速度 1 0 0 0 / s で I S O 1 1 4 4 3 に

準拠して、溶融粘度を測定した。

（ペレット中のガラス繊維の重量平均長さの測定）

樹脂組成物ペレット 5 g を 600℃ で 2 時間加熱し、灰化した。灰化残渣を 5 % ポリエチレングリコール水溶液に十分分散させた後、スポイトでシャーレに移し、顕微鏡でガラス繊維を観察した。同時に画像解析装置（株）ニレコ製 L U Z E X F S を用いてガラス繊維の重量平均長さを測定した。尚、画像解析の際には、重なり合った繊維を別々の繊維に分離し、それぞれの長さを求めるようなサブルーチンを適用した。尚、50 μ m 以下のガラス繊維は除外して測定した。

#### 【0034】

（ペレットの射出成形）

上記押出成形で得られたペレットから射出成形機により下記試験片を作製し、評価し、表 2 に示す結果を得た。

射出成形機：ファナック（株）製、F A N U C α - 5 0 C （中径ロングノズル使用）

シリンダー温度：350℃（ノズル側）－350℃－340℃－330℃

金型温度：80℃

射出速度：200 mm / s e c

保圧力：29 MP a

充填時間：0.08 s e c

保圧時間：1 s e c

冷却時間：5 s e c

スクリー回転数：120 r p m

スクリー背圧：0.5 MP a

（成形品の曲げ弾性率）

I S O 178 に準拠して、測定した。

（ソケットの平面度の測定）

樹脂組成物ペレットから、下記成形条件で、図 2 に示すような、全体の大きさ 39.8 mm×36.82 mm×1 mm（厚み）、中央部に 19.02 mm×19.02 mm の孔開き（半導体装置設置用の孔）を有し、孔開き周辺部に多数のピン孔が設けられた格子部を有し、格子部のピッチ間隔 1.2 mm の平面状ソケット（ピン孔数 494 ピン、格子部の肉厚 0.18 mm）を射出成形した。尚、ゲートは樹脂溜り反対面からのフィルムゲートを用い、ゲート厚みは 3 mm とした。

図 2（a）は多数のピン孔が格子状に設けられたソケットの上面図、図 2（d）は図 2（a）の A 部詳細であり、図 2（b）はフィルムゲート側から見た側面図、図 2（c）は上方に樹脂溜まりを有する側面図、図 2（e）は図 2（c）の B 部詳細である。

得られたソケットを水平な机の上に静置し、ソケットの高さをミットヨ製クイックビジョン 404 P R O C N C 画像測定機により測定した。その際、ソケット端面より 0.5 mm の位置を 10 mm 間隔で測定し、最大高さと最小高さの差を平面度とした。

更に、日本バルス技術研究所製大型卓上リフローハンダ付け装置 R F - 300 を使用し、ハンダ印刷及び部品の搭載をしないで、ハンダリフローに相当する条件、即ちピーク温度 250℃、同温度での加熱温度 5 分の条件で加熱した後、上述の方法で平面度を測定し、これをハンダリフロー前後の平面度の差とした。

#### 【0035】

【表 1】

表 1（フィード方法、組成及び押出し条件）

	メインフィード口 1 から の添加量（重量%）		サブフィード口 3 から の添加量（重量%）		樹脂供給比 X/(1-X)	回転数 (rpm)	押出量 (kg/h)
	樹脂 (X)	滑剤	樹脂 (1-X)	GF			
実施例 1	29.7	0.3	30	40	49.7/50.3	290	350
実施例 2	19.7	0.3	40	40	33/67	290	350
実施例 3	9.7	0.3	50	40	16.2/83.7	290	350
実施例 4	19.7	0.3	50	30	24.6/75.4	290	250
比較例 1	34.7	0.3	25	40	58.1/41.9	290	350
比較例 2	44.7	0.3	25	30	55.9/44.1	290	250
比較例 3	59.7	0.3	0	40	—	290	250
比較例 4	樹脂59.7重量%、滑剤0.3重量%、GF40重量%をメインフィード口 1 から添加した。					290	250

【 0 0 3 6 】

【表 2】

表 2（樹脂組成物、同ペレット、射出成形品の物性等）

	重量平均 繊維長 ( $\mu\text{m}$ )	300 $\mu\text{m}$ 以上 の繊維比率 (重量%)	溶融 粘度 (Pa·s)	曲げ 弾性率 (GPa)	リフロー前 平面度 (mm)	リフロー前後 平面度差 (mm)
実施例 1	337	34.2	47	16.0	0.075	0.014
実施例 2	245	22.5	40	15.6	0.047	0.010
実施例 3	206	19.4	38	14.3	0.057	0.009
実施例 4	279	26.8	44	15.8	0.059	0.010
比較例 1	374	43.6	47	16.9	0.092	0.010
比較例 2	415	55.1	49	18.0	完全充填できず	
比較例 3	420	57.9	51	18.3	完全充填できず	
比較例 4	150	10.4	35	13.2	0.071	0.068

【図面の簡単な説明】

【 0 0 3 7 】

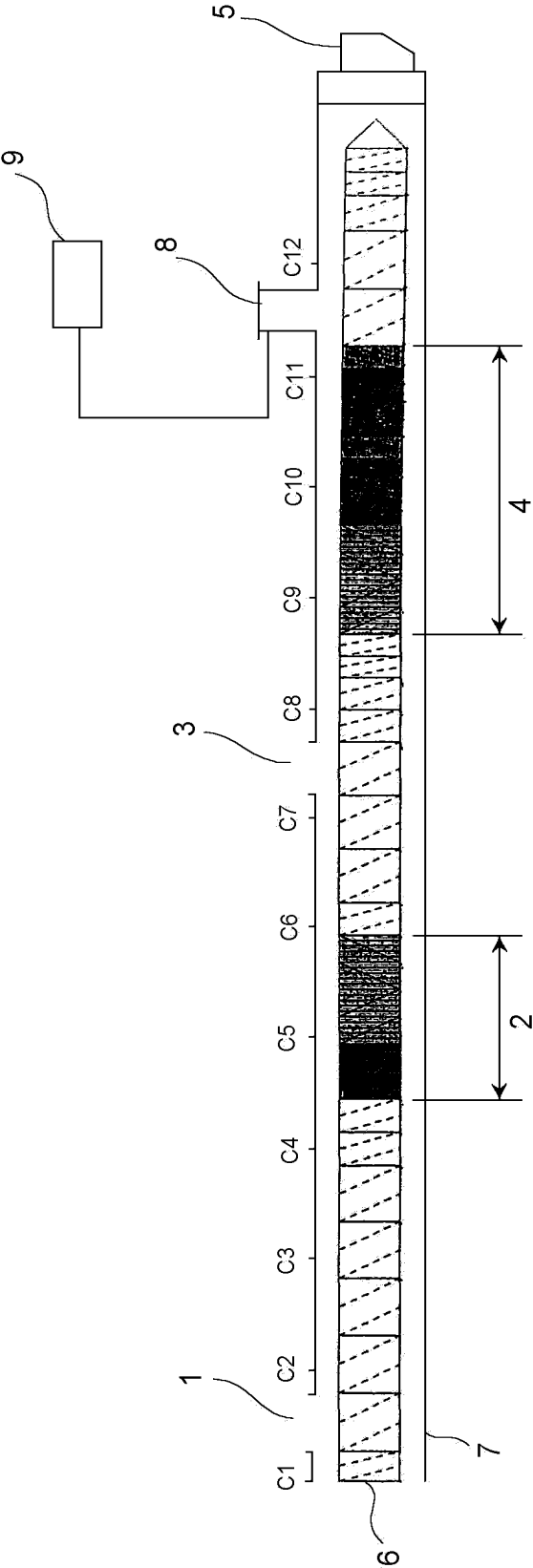
【図 1】 本発明で用いる押出機の一例を示す図である。

【図 2】 本発明に係る射出成形品の一例を示す図である。

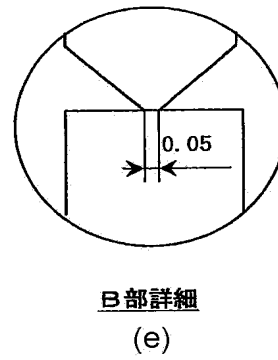
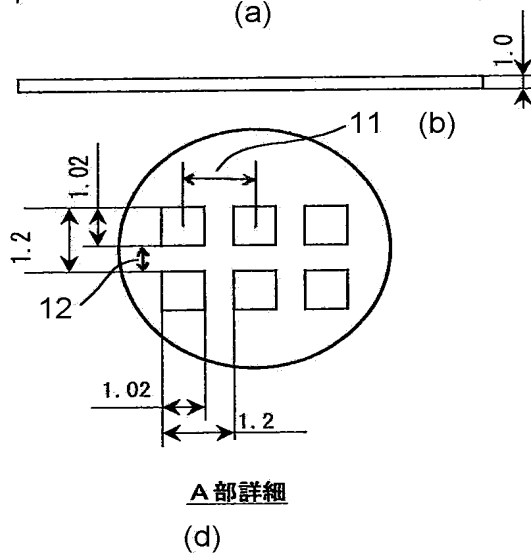
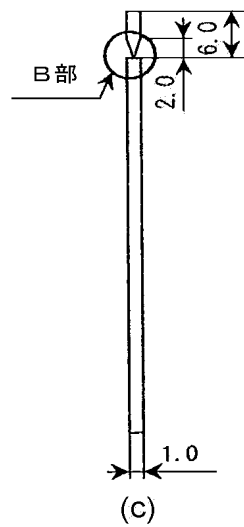
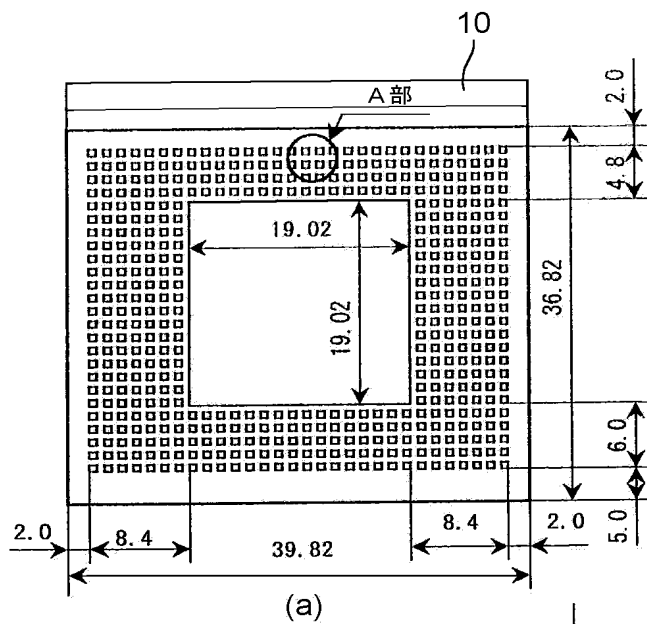
【符号の説明】

【 0 0 3 8 】

- 1   メインフィードロ
- 2   可塑化部
- 3   サイドフィードロ
- 4   混練部
- 5   ダイ
- 6   スクリュウ
- 7   シリンダー
- 8   ベントロ
- 9   減圧装置
- 10  樹脂溜まり
- 11  ピッチ間隔
- 12  格子部の肉厚



【図 2】





【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 繊維状充填剤が、所定充填量で、均一に配合され、所定重量平均繊維長を有する樹脂組成物ペレットを通常押出機により、樹脂の劣化を抑え、経済的に製造することであり、特に半導体装置の格子部ピッチ間隔が2.0 mm以下、格子部肉厚が0.5 mm以下、ソケットの高さが5.0 mm以下の平面状ソケットピンのソケット用樹脂組成物ペレットを製造する。

【課題を解決するための手段】 樹脂80～55重量%と重量平均繊維長1 mm以上の繊維状充填剤20～45重量%を押出機に供給して、樹脂組成物ペレット中の繊維状充填剤の重量平均繊維長が180～360  $\mu$ mの樹脂組成物ペレットを製造する際、押出機のメインフィードロから樹脂の一部の量（x）を供給し、サイドフィードロから繊維状充填剤及び上記樹脂の残りの量（1-x）を $x / (1-x)$ が50/50～10/90重量%比となるように供給する。

【選択図】 図1

## 出願人履歴

3 9 0 0 0 6 3 2 3

20020118

住所変更

東京都千代田区霞が関三丁目2番5号

ポリプラスチックス株式会社

3 9 0 0 0 6 3 2 3

20040507

住所変更

東京都港区港南二丁目18番1号

ポリプラスチックス株式会社